

京都大学	博士（工学）	氏名	CHENG YINGCHAO
論文題目	Behavior and Control of Mercury in Sewage Sludge Thermal Treatment Process (下水汚泥熱処理プロセスにおける水銀の挙動と排出制御)		
<p>(論文内容の要旨)</p> <p>下水汚泥は産業廃棄物として大量に排出される廃棄物の一つであるとともに、都市に集積されたバイオマス資源かつ有用資源である。したがって、適正処理とできる限りの有効利用が求められる。本研究は、下水汚泥の熱処理プロセスとして日本で広く用いられている焼却等を対象に各元素の挙動、特に、最近、水銀に関する水俣条約によって規制対象となった水銀の挙動を解明するとともに、その排出制御技術として、水銀除去用含浸活性炭の開発を検討したもので6章から成る。</p> <p>第1章は序論であり、下水汚泥の発生量や処分方法、熱処理技術、排ガス中水銀の除去技術に関して文献調査を行い、主要な研究背景について述べた後、研究の目的・論文の構成を示している。</p> <p>第2章では1つの下水処理場に設置されている2つの流動床式焼却炉及び1つのストーカ式焼却炉を対象に、焼却対象物の汚泥、プロセスからの排水、焼却灰等のサンプリング方法及び分析方法を示した後、各種サンプルの元素組成を明らかにし、次章以降で考察する元素や重金属の挙動に関する基礎データを示している。</p> <p>第3章は第2章で得た基礎データを基に、3つの炉における汚泥から灰への元素の濃縮係数や排水や排ガスへの分配を求め、元素ごとの挙動・マスバランスを明らかにしている。ナトリウムについては処理水の再利用により下水処理場内での循環濃縮が認められ、硫黄と水銀以外の他の元素は焼却残渣中に濃縮されること、流動床式焼却炉とストーカ式焼却炉では、焼却灰中の鉛及びカドミウムの濃度に違いがあることを明らかにした。流動床式焼却炉及びストーカ式焼却炉での燃焼過程及び排ガス処理過程でどのような反応が生じて各分配が異なるかを熱力学的平衡計算により裏付けている。下水汚泥焼却灰にはリンが多量に含まれることから肥料原料として有効利用することを想定した場合、ストーカ式焼却炉から排出される主灰及びリドリング灰は肥料原料における重金属の基準を満たし、全体の灰の99.7%が有効利用可能であったが、流動床式焼却炉の灰では鉛について基準を超過するため有効利用困難であることを示している。</p> <p>第4章は、上記の焼却炉に加え、別の処理場の下水汚泥焼却炉及び炭化炉における水銀の挙動に関する調査を行っている。焼却炉の排煙処理塔入口水銀濃度は日本の規制値である50$\mu\text{g}/\text{Nm}^3$を超えるケースも認められたが、処理塔出口においては多くが除去されていることを示している。入口での水銀形態は2価水銀が多く、これらが排煙処理塔でスクラバー水に溶解して除去されたと考えられ、この傾向は熱力学平衡計算からも裏付けられている。炭化炉においては、炭化温度の変動が排ガス中水銀濃度に影響を与え、正の相関が認められたこと、排煙処理塔入口では原子状水銀の状態が存在することを明らかにしている。炭化炉の排ガス中水銀を除去するために活性炭吸着塔と水銀吸着ポリマー触媒を並列で設置し、除去効果を確認した結果、活性炭吸着塔は極めて高度に水銀除去されたが、運転上での難点があり、水銀吸着ポリマー触媒では運転上の支障はなく、ユニットの段数を重ねることで水銀が確実に除去されることがわかり、排煙処理塔出口排ガスには適していると結論づけている。</p>			

京都大学	博士（工学）	氏名	CHENG YINGCHAO
------	--------	----	----------------

第5章は、より高度に排ガス中の原子状水銀を除去するために、活性炭に4種類のヨウ素化合物をそれぞれ含浸させ、ラボ試験により水銀の除去特性を調べている。ヨウ素化合物を含浸させた活性炭はいずれも高い水銀除去能を示している。吸着前後の活性炭に対して BET 比表面積、X 線回折、X 線光電子分光、X 線吸収端微細構造等各種分析を行い、それぞれの化合物を含浸させた活性炭上での水銀吸着反応機構を水銀、ヨウ素、炭素など各種元素の化学状態から考察している。その結果、主に水銀はヨウ化水銀（I、II）として活性炭上で吸着されることを明らかにし、ヨウ化水銀（II）が支配的であること、X 線吸収微細構造分析からヨウ素分子の生成が示唆され、水銀の吸着除去反応に重要であると示している。

第6章は、結論であり、本論文で得られた成果について要約し、今後の課題を述べている。

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、都市型バイオマス資源かつ産業廃棄物である下水汚泥の熱処理施設における重金属の挙動、特に水銀に注目して、実際の複数の熱処理プロセス周りでの調査を行い、マスバランスを明らかにするとともに、熱処理過程で排ガスに移行する水銀の大気への排出を制御するために、新たな活性炭吸着材の開発を検討したものである。得られた主な成果は以下のとおりである。

1. 焼却炉形式による重金属の挙動の違いを明らかにするため、一つの下水処理場に設置された流動床式焼却炉とストーカ式焼却炉に対して、汚泥、排ガス、焼却残渣、排水中の元素を調査するとともに、熱力学平衡計算よりその挙動を確認した。焼却炉形式の違いは灰の性状に大きく表れ、流動床式焼却炉の焼却残渣では鉛濃度が肥料の基準を超過したが、ストーカ式焼却炉では主灰と排ガスに随伴して後段で集塵される灰に分離回収できることから、99.7%の残渣を肥料原料として有効利用できることを示した。

2. 焼却プロセスとともに最近広く普及し始めている炭化プロセスでの水銀挙動を実機プラントにおいて調査した結果、焼却プロセスでは排煙処理塔入口での水銀の化学形態が2価水銀の形態であり、スクラバー水に溶解して除去されることを実測及び熱力学平衡計算より明らかにした。炭化プロセスでは、排煙処理塔入口での水銀の化学形態が原子状水銀であり、排煙処理塔では除去困難であることを明らかにするとともに、活性炭吸着塔及び水銀ポリマー触媒で除去可能であることを示した。

3. 排ガス中原子状水銀の除去について、ヨウ素化合物を含浸した活性炭を新たに作成して水銀吸着実験を行い、含浸活性炭の水銀除去能が高いことを示した。前後の活性炭に対して各種X線分析等により、水銀の吸着反応機構を水銀、ヨウ素、炭素など各種元素の化学状態から明らかにし、主に水銀はヨウ化水銀(I、II)として活性炭上で吸着され、ヨウ化水銀(II)が支配的であること、ヨウ素分子の生成がその反応に重要であることを示した。

以上、本研究は、日本で広く用いられている下水汚泥の焼却プロセス及び近年採用が増加している炭化プロセスにおける各元素の挙動、特に、水銀の挙動を明らかにし、その排出制御技術を検討したものである。本成果は下水汚泥だけにとどまらず、他の廃棄物焼却や石炭燃焼などの水銀排出源の制御にも応用可能であり、今後の廃棄物処理における有害物質制御、さらには下水汚泥焼却灰の有効利用の観点からは資源循環の実現に貢献するものである。

したがって、学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士(工学)の学位論文として価値あるものと認める。また、令和2年2月21日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行って、申請者が博士後期課程学位取得基準を満たしていることを確認し、合格と認めた。なお、本論文は、京都大学学位規程第14条第2項に該当するものと判断し、公表に際しては、(令和4年3月31日までの間)当該論文の全文に代えてその内容を要約したものとすることを認める。

要旨公開可能日：2020年 3月23日以降